

Zum β -Zerfall des ^{87}Rb :
Nachprüfung des Zerfallsschemas
und Neubestimmung der Halbwertszeit

Inaugural-Dissertation

zur
Erlangung der Doktorwürde
der
Philosophischen Fakultät
der
Philipps-Universität
zu Marburg

vorgelegt von

Ingeborg Geese-Bähnisch
aus Kassel

Marburg 1954



Als Dissertation angenommen am 13. 12. 1954

Tag der mündlichen Prüfung: 22. 12. 1954

Berichterstatter: Dozent Dr. E. Huster

Mitberichterstatter: Professor Dr. W. Walcher

Gedruckt mit Genehmigung der Fakultät

Dekan: Prof. Dr. A. Rammelmeyer

Sonderdruck aus „Zeitschrift für Physik“, Band 142, Seite 565—584 (1955)

Springer-Verlag, Berlin · Göttingen · Heidelberg

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Marburg.

Zum β -Zerfall des Rubidiums 87: Nachprüfung des Zerfallsschemas und Neubestimmung der Halbwertszeit*.

Von

INGEBORG GEESE-BÄHNISCH.

Mit 4 Figuren im Text.

(Eingegangen am 22. Mai 1955.)

Messungen an natürlichem Rb in einem Doppelzählrohr ergaben keine Koinzidenzen, die auf gleichzeitiger Emission von β -Teilchen und Konversionselektronen beruhen. Da ein konvertierter γ -Übergang somit nicht existiert und unkonvertierte γ -Strahlung bisher nicht gefunden wurde, führt der β -Zerfall des ^{87}Rb direkt auf den Grundzustand des ^{87}Sr . — Aus zahlreichen Aktivitätsmessungen der letzten 10 Jahre wurde stets eine Halbwertszeit des ^{87}Rb von $T \approx 6 \cdot 10^{10}$ a abgeleitet, obwohl die gemessenen spezifischen Aktivitäten um mehr als den Faktor 2 streuten. Bei der hier versuchten Neubestimmung im Doppelzählrohr zeigte sich, daß zu geringe elektrische Leitfähigkeit der Präparatunterlagen zu beträchtlichen Zählverlusten führen kann. Präparate auf gut leitenden Unterlagen ergaben unkorrigiert bereits $T < 5,2 \cdot 10^{10}$ a. Korrektur für Absorption in Präparat und Unterlage

$$\text{führt auf } T = \left(4,3 \begin{smallmatrix} + 0,3 \\ - 0,2 \end{smallmatrix} \right) \cdot 10^{10} \text{ a.}$$

Bei geologischen Altersbestimmungen mit der Rb/Sr-Methode erhielt ALDRICH mit $T = 6,1 \cdot 10^{10}$ a im allgemeinen höhere Gesteinsalter als andere Methoden sie ergeben. Übereinstimmung würde sich bei seinen bisherigen Messungen mit $T \approx 5 \cdot 10^{10}$ a, nicht aber mit $T = 4,3 \cdot 10^{10}$ a ergeben.

I. Übersicht und Problemstellung.

Obwohl die 1905 durch J. J. THOMSON [31] entdeckte β -Aktivität des natürlichen Rubidiums seitdem in zahlreichen Arbeiten untersucht wurde, stehen die Daten dieses Zerfalles zum Teil bis heute nicht zweifelsfrei fest. Genaue Messungen werden erschwert durch die hohe Halbwertszeit, die relativ niedrige Zerfallsenergie und vor allem durch die Form des dreifach verbotenen β -Spektrums (Kernspinänderung $\Delta I = 3$ [14], mit Paritätswechsel [19]), welches einen ungewöhnlich hohen Anteil sehr energiearmer Elektronen enthält: Die obere Grenzenergie ist $E_0 \approx 275$ keV [3], [5], [20], aber nur etwa 5 % der β -Teilchen haben Energien über 130 keV, bei mindestens 25 % liegt die Energie unter 20 keV [5], [20]. Bei der Messung des β -Spektrums und bei der Auszählung der β -Teilchen zur Bestimmung der Halbwertszeit müssen

* D 4. — Über den ersten Teil dieser Arbeit (Zerfallsschema) wurde auf dem Deutschen Physikertag in Berlin, September 1952 [1], über den zweiten (Halbwertszeit) auf der Physikertagung in Hamburg, September 1954 [9] berichtet.

deshalb, um die Absorptionsverluste im Präparat niedrig zu halten, sehr dünne, und, wegen der hohen Halbwertszeit, entsprechend großflächige Präparate verwendet werden. Die ungewöhnliche Form des Rb- β -Spektrums macht es verständlich, daß vor allem ältere Messungen von Halbwertszeit und Zerfallsenergie wenig genau sind.

O. HAHN und Mitarbeiter [10], [22], [29] ermittelten 1938 die Halbwertszeit des ^{87}Rb nach einer Methode, bei der die Absorption von β -Teilchen ohne Einfluß ist: Aus einem Lepidolithen isolierten sie das Rb und das Sr. Das Sr erwies sich als reines ^{87}Sr [29], während das natürliche Sr mehr als 80% ^{88}Sr enthält. Damit war gezeigt, daß ^{87}Rb das β -aktive Isotop ist, und aus dem Rb/Sr-Verhältnis und dem bekannten geologischen Alter des Minerals folgte eine Halbwertszeit von $T < 6,3 \cdot 10^{10}$ a. Nach Angabe der Autoren [29] können alle bei der Altersbestimmung nach der U/Pb-Methode und bei der Bestimmung des Rb/Sr-Verhältnisses möglichen Fehler nur zu einem zu großen Wert der Halbwertszeit geführt haben. Der genannte Wert wird deshalb ausdrücklich als *obere Grenze* bezeichnet. Eine untere Grenze wird nicht angegeben.

Alle seitdem durch Auszählung der β -Teilchen gewonnenen Werte der Halbwertszeit liegen zwischen $5,8$ und $6,5 \cdot 10^{10}$ a, in guter Übereinstimmung mit dem geologischen Wert von HAHN und Mitarbeitern. Die gemessenen spezifischen Aktivitäten aber, aus denen diese Halbwertszeiten berechnet wurden, streuen um mehr als den Faktor 2, von $\dot{n} = 22,8$ bis $\dot{n} = 49,6$ β -Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl. (In Tabelle 1 sind die Meßwerte, die angewandten Korrekturen und die Halbwertszeiten zusammengestellt.) Der letztgenannte von Frau KEMMERICH [18] gemessene Wert fällt aus allen anderen Messungen weit heraus. Sie zählte die von RbCl-Präparaten in den Raumwinkel $\Omega = 2\pi$ emittierten β -Teilchen, maß also in „ 2π -Geometrie“, und erhielt $\frac{\dot{n}}{2} = 24,8$, woraus sich $\dot{n} = 49,6$ für den Raumwinkel $\Omega = 4\pi$ ergibt. Daraus folgt der bisherige „Standardwert“ von $T = 6,0 \cdot 10^{10}$ a nur unter der Annahme, daß bei jedem Zerfall außer dem β -Teilchen ein Konversionselektron von einer zu 100% konvertierten γ -Strahlung emittiert wird, d.h. daß der Zerfall des ^{87}Rb auf ein angeregtes Niveau des ^{87}Sr -Kernes führt*. Ohne diese Annahme errechnet man aus der Messung von Frau KEMMERICH mit der von ihr bestimmten Korrektur für Rückstreuung aus der Unterlage (10%) den Wert $T = 4,0 \cdot 10^{10}$ a; der Wert $T = 6 \cdot 10^{10}$ a würde sich nur bei Annahme einer Rückstreuung von über 60% ergeben. Eine so hohe Rückstreuung ist jedoch für β -Strahler in gleicher Geometrie und auf gleicher Unterlage niemals gemessen worden.

* Auf dies Zerfallsschema hatten HAXEL und HOUTERMANS [12] aus ihren Koinzidenzmessungen am Rb geschlossen.

Tabelle 1. Bisherige Messungen der Halbwertszeit des ^{87}Rb .

	Autoren	Meß- methode	Ausgenutzter Raumwinkel Ω	$\ln \Omega$ gemessene spe- zielle Aktivität (min · mg RbCl) ⁻¹	Auf Raumwinkel 4 π umgerechnet (min · mg RbCl) ⁻¹	Dünnschicht RbCl-Schicht	Korrektur für Absorption in RbCl-Schicht	Korrektur für Rückstreuung	100%ige Konver- sion angenommen	T in 10 ¹⁰ a	Bemerkungen
1	MÜHLHOFF (1930)	Zählrohr	—	—	—	1,5 mg/cm ²	—	—	nein	12	
2	ORBAN (1934)	Nebel- kammer	—	—	—	Sättigungsdicke	mit Mas- senabsorp- tionskoeffizient	—	nein	4,3	
3	HAHN, STRASSMANN und WALLING (1938)	geolo- gisch	—	—	—	—	—	—	—	6,3	obere Grenze für T
4	EKLUND (1946)	Zählrohr	0,035 · 4 π	0,8	22,8	0,34 mg/cm ²	graphisch	—	nein	5,8 $\pm$ 1,0	
5	HAXEL und HOU- TERMANS (1948)	Zählrohr	4 π	27,2	27,2	0,1 mg/cm ²	keine	—	gleich- gütig	6,5 $\pm$ 0,6	
6	KEMMERICH (1949)	Zählrohr	2 π	24,8	49,6	0,025 mg/cm ²	keine	10%	ja	6,0 $\pm$ 0,6	RbCl aufgedampft
7	CURRAN, DIXON und WILSON (1951)	Zählrohr	2 π	14,7	29,4	0,128 mg/cm ²	4,5%	7,5%	nein	6,15 $\pm$ 0,3	RbCl aus Lösung auskristallisiert
8	KANTER (1952)	Zählrohr	2 π	24—25	—	etwa 0,1 mg/cm ²	—	—	—	—	gleiche Meßbedingungen wie KEMMERICH
9	MCGREGOR und WIEDENBECK (1952)	Zählrohr	4 π	28,3	28,3	etwa 0,025 mg/cm ²	graphisch	—	gleich- gütig	6,23 $\pm$ 0,3	Folie (Zapon plus Al) nur 25 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
10	LEWIS (1952)	Scintil- lations- zähler RbJ (Ti)	4 π	23,4 (umgerechnet auf RbCl)	23,4	—	—	—	gleich- gütig	5,9 $\pm$ 0,3	Zahl der β -Teilchen un- ter 17,5 keV durch Ex- trapolation ermittelt
11	FLINTA und EKLUND (1954)	Zählrohr	0,0545 · 4 π	1,4	25,5	0,11 mg/cm ²	graphisch	—	nein	6,1 $\pm$ 0,2	verschiedenste Korrekturen
12	MCGREGOR und WIEDENBECK (1954)	Zählrohr	4 π	—	—	—	—	—	—	6,2 $\pm$ 0,3	Präparat mit ^{87}Rb ange- reichert; Folie und Prä- parat zusammen nur 50 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$

Sah man also die Emission von Konversionselektronen beim Rb- β -Zerfall als nicht gesichert an — und diese Möglichkeit scheinen HAXEL und HOUTERMANS selbst bald erwogen zu haben [13] — und war weiter die Messung von Frau KEMMERICH richtig, so widersprach diese Messung entweder den übrigen Bestimmungen der Halbwertszeit oder den vorliegenden Rückstreuungsmessungen. Es schien daher angebracht, das Zerfallsschema zu überprüfen und die Halbwertszeit neu zu bestimmen.

Die Beseitigung der vorliegenden Widersprüche schien vor allem notwendig wegen der Bedeutung der genauen Kenntnis der Halbwertszeit des ^{87}Rb für geologische Altersbestimmungen. Nach Abschluß der Messungen wurde bekannt, daß ALDRICH und Mitarbeiter nach der Rb/Sr-Methode mit dem von ihnen angenommenen Wert von $T = 6,1 \cdot 10^{10}$ a im allgemeinen höhere Gesteinsalter erhielten als sich nach anderen Methoden ergaben. Mit $T \approx 5 \cdot 10^{10}$ a würden die Ergebnisse meist übereinstimmen*.

II. Zerfallsschema des ^{87}Rb .

1. Vorbemerkung.

Im folgenden wird die Zählrate, d.h. die Zahl der Zählstöße in einer beliebigen Zeiteinheit, meist einer Minute, mit $\dot{N}$, die spezifische, d.h. die auf ein Milligramm RbCl bezogene Zählrate, mit $\dot{n}$ ($\text{min} \cdot \text{mg RbCl}$) $^{-1}$ bezeichnet. Beide Symbole werden entsprechend der jeweiligen Bedeutung indiziert. Mit $\dot{n}$ ist speziell auch die gemessene spezifische Aktivität bezeichnet, die wahre spezifische Aktivität dagegen mit $\dot{n}_w$, die wahre Aktivität, d.h. die Zerfallsrate, mit $\dot{N}_w$.

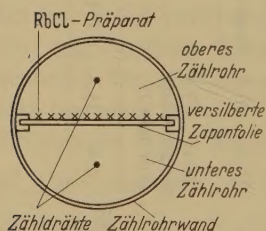


Fig. 1.
Schnitt durch das 4π -Zählrohr.

2. Einleitung.

HAXEL und HOUTERMANS [12] maßen 1948 in einem Doppelzählrohr (4π -Zählrohr) (Fig. 1) an RbCl-Schichten, die auf versilberte Zaponfolien aufgedampft waren, die Zählraten $\dot{N}_o$ und $\dot{N}_u$ im oberen und unteren Zählrohr und die Koinzidenzrate $\dot{N}_k$. Sie fanden das Verhältnis $\dot{N}_o : \dot{N}_u : \dot{N}_k = 3 : 2 : 1$ (nach Abzug der Nulleffekte) und schlossen daraus, daß bei jedem Zerfall gleichzeitig zwei Elektronen — β -Teilchen und Konversionselektron — emittiert werden, von denen eines so energiearm ist, daß es die Folie nicht durchdringen kann. Unter dieser Annahme ergibt sich genau das angegebene Verhältnis der Zählstöße [12].

* Briefliche Mitteilung von L. T. ALDRICH (Carnegie Institute for Terrestrial Magnetism, Washington D. C.) vom 14. 10. 54.

Koinzidenzen können jedoch auch andere Ursachen haben; sie können z. B. durch β -Teilchen hervorgerufen werden, welche aus der Wand oder dem Gas eines der Zählrohre zurückgestreut werden, die Folie durchdringen und so auch das andere Zählrohr zünden. Sollten die von HAXEL und HOUTERMANS gefundenen Koinzidenzen auf diese oder auch eine andere Weise, jedenfalls aber nicht durch gleichzeitige Emission zweier Elektronen, entstanden sein, so müßte das von ihnen gefundene Zahlenverhältnis zufällig sein.

Auf die von HAXEL und HOUTERMANS gefundene Halbwertszeit ist Zahl und Ursache der Koinzidenzen ohne Einfluß, worauf von ihnen selbst hingewiesen wird [13]. Die aus den drei Meßwerten $\dot{N}_o$, $\dot{N}_u$ und $\dot{N}_k$ berechnete Zahl $\dot{N} = \dot{N}_o + \dot{N}_u - \dot{N}_k$ ist nämlich die im 4π -Zählrohr registrierte Zahl der *Zerfälle*: Jeder überhaupt registrierte Zerfall erhöht $\dot{N}$ um eins, gleichgültig, ob er nur in einem Zählrohr oder in beiden Zählrohren gleichzeitig registriert wird. Halbwertszeit-Bestimmungen in 4π -Geometrie sind also vom Zerfallsschema unabhängig. (Bei Messungen in 2π -Geometrie dagegen muß man das Zerfallsschema kennen. Ist hier jedes β -Teilchen von einem Konversionselektron begleitet, so mißt man, von der Rückstreuung ganz abgesehen, im Raumwinkel 2π nicht $1/2$, sondern $3/4$ der Zerfälle [18].) — Die in 4π -Geometrie gemessene Aktivität kann nur noch durch Absorption in Folie und Präparat gefälscht sein.

3. Apparatur, Experimentelles.

Zur Untersuchung des Zerfallsschemas diente ein 4π -Zählrohr, das in seinem Aufbau dem von HAXEL und HOUTERMANS benutzten entsprach (Fig. 1). Mantel und Deckel bestanden aus Messing; der Innendurchmesser des Zylinders betrug 40 mm, die Zähldrahtlänge 100 mm. Die beiden Zählrohre waren durch eine Zaponfolie von etwa 15 cm² getrennt, die auf einen in den Zylinder einschiebbaren Messingrahmen aufgebracht war. Die Folie wurde beiderseits mit Silber und, nach Messung des Nulleffekts, einseitig mit RbCl bedampft. Nach Angabe des Lieferanten (Dr. W. FRANKE, Frankfurt a. M.) war das RbCl praktisch frei von Cs und enthielt weniger als 0,15 Gewichtsprocente Kalium. Die β -Aktivität des K trägt demnach weniger als 0,1⁰/₁₀₀ zur Strahlung bei [15]. Somit waren weder Zählrate noch Präparatgewicht zu korrigieren. — Im folgenden heißt das Zählrohr, in dem sich das Präparat befindet, „oberes“, das andere „unteres“ Zählrohr. Bei Füllung mit 120 Torr Ar-Alkohol-Gemisch (10:1) lagen die Einsatzspannungen zwischen 1100 und 1200 V. Die Zählplateaus waren durchschnittlich 100 V lang und hatten eine Steigung von 2 bis 8%/100 V. Gezählt wurde jeweils bei einer Spannung, die 25 V über dem Plateaubeginn lag. — Das Doppeltzählrohr war allseitig mit 2,5 cm Blei abgeschirmt.

Mit drei Zählvorrichtungen wurden gleichzeitig die Zählraten $\dot{N}_o$ und $\dot{N}_u$ im oberen und unteren Zählrohr und die Koinzidenzrate $\dot{N}_k$ ermittelt (Fig. 2). — Folien und aufgedampfte Schichten wurden mit einer Mikrowaage gewogen.

4. Meßergebnisse und Folgerungen.

a) *Nulleffekt.* Hier sollen nur einige für die weitere Untersuchung mitunter wichtige Beobachtungen zusammengestellt werden. 1. Die Zählrate $\dot{N} = \dot{N}_o + \dot{N}_u - \dot{N}_k$ hing praktisch nicht davon ab, ob versilberte Zaponfolien verschiedener Dicke oder ein 0,8 mm starkes Messingblech als Trennwand zwischen die beiden Zählrohre eingeschoben wurden. 2. Der Koinzidenzen-Nulleffekt $\dot{N}_k$ war bei senkrechter Lage der Trennfolie merklich (rund 20%) geringer als bei waagerechter, während der Gesamtnulleffekt $\dot{N}$ von der Lage der Folie praktisch nicht abhing. Die Abhängigkeit von $\dot{N}_k$ von der Lage der Folie ist auf den Höhenstrahlungsanteil an den Koinzidenzen zurückzuführen. 3. Wurde das Zählrohr mit einer 0,5 mm dicken, mit Aquadag leitend gemachten Zelluloidfolie ausgelegt, so sanken Nulleffekt und Koinzidenzen-Nulleffekt um 20 bis 25%*.

b) *Messungen mit RbCl.* Nach Bedampfen der Folien mit RbCl traten zunächst zusätzliche Koinzidenzen auf; das Verhältnis $\dot{N}_o : \dot{N}_u : \dot{N}_k$ (nach Abzug der Nulleffekte) war jedoch von Folie zu Folie verschieden. Eine genaue Untersuchung zeigte dann, daß innerhalb der Fehlergrenzen alle diese Koinzidenzen durch zwei Störeffekte und nicht durch Konversionselektronen verursacht wurden.

1. Der größte Teil der zusätzlichen Koinzidenzen rührte von Photonen her, die bei der Entladung eines der Zählrohre entstehen, durch Löcher oder Risse in der Folie in das andere Zählrohr gelangen und es durch Photoeffekt ebenfalls zünden. Den Einfluß solcher Löcher zeigte z.B. Folie 13. Sie hatte, als sie nach der Messung aus dem Zählrohr genommen wurde, einen kleinen Riß. Nach Verkleben des Risses mit einem Stückchen Zellonfolie sank $\dot{N}_k$ von 50 auf 38 min⁻¹. (Natürlich war auch ein Teil des Koinzidenzen-Nulleffektes auf solche Risse zurückzuführen, meist aber entstanden die Risse erst bei der RbCl-Aufdampfung.) — Den Einfluß der Entladungsphotonen auf die Koinzidenzrate zeigt weiter folgende Beobachtung: Bei den ersten Messungen reichte die Trennwand zwischen beiden Zählrohren nicht ganz bis an die Deckel

* Eine befriedigende Erklärung dieser starken Abnahme wurde nicht gefunden. — Um einen die Messung fälschenden Störeffekt kann es sich nicht handeln, da die Zahl der vom Rb herrührenden Zählstöße durch die Zelluloidschicht nicht beeinflußt wurde.

heran, so daß Photonen durch den Zwischenraum von einem Zählrohr ins andere gelangen konnten. Nach Verlängerung der Trennwand bis an die Deckel heran sank die Koinzidenzrate um rund ein Drittel. — Sticht man schließlich mit einer Nadel genügend viele Löcher in die Folie, so kann man Koinzidenz bei jedem Zählstoß erreichen.

Zur Ausschaltung der durch Photonen erzeugten Koinzidenzen wurde in der Folge nur noch an lochfreien Folien gemessen. Ob eine Folie lochfrei, d. h. für die Entladungsphotonen undurchlässig ist, kann objektiv im Zählrohr geprüft werden: Bei lochfreier Folie muß die Zählrate in jedem der Zählrohre *unabhängig* davon sein, ob das andere in Betrieb ist oder nicht.

Bei lochfreien Folien war die Koinzidenzrate nach Bedampfung mit RbCl nur noch wenig höher als vorher. Spätere genauere Messungen zeigten, daß die spezifische Rate $\dot{n}'_k$ dieser nicht durch Photonen verursachten Koinzidenzen in einem weiten Bereich nur wenig von Präparat- und Foliendicke abhing, und zwar war $\dot{n}'_k = 3$ bis $4/\text{min} \cdot \text{mg RbCl}$ (siehe S. 578/79, Tabelle 2 und Fig. 4b).

2. Es blieb zu prüfen, wie diese nicht von Photonen, sondern offenbar vom Rb herrührenden Koinzidenzen zustandekommen. Zumindest zum Teil konnten sie durch β -Teilchen, die aus der Wand eines Zählrohres durch die Folie hindurch ins andere Zählrohr zurückgestreut wurden, verursacht sein. Da die Rückstreuung mit sinkender Kernladungszahl des streuenden Materials abnimmt [7], wurde die Messingwand des Zählrohres mit Materialien kleinerer Ordnungszahl belegt. Nach Einlegen einer $15\ \mu$ starken Aluminiumfolie war die Koinzidenzrate praktisch ungeändert. Wurde jedoch eine 0,5 mm dicke, mit Aquadag leitend gemachte Zelluloidfolie eingelegt, so waren die Koinzidenzraten bei Folien mit und ohne RbCl innerhalb der Fehlergrenzen gleich, d. h. die wenigen nicht von Photonen erzeugten Koinzidenzen, die bei einer Zählrohrwand aus Messing noch auftraten, müssen durch β -Teilchen verursacht worden sein, die aus der Wand zurückgestreut wurden. — Die oben erwähnte weitgehende Unabhängigkeit von $\dot{n}'_k$ von der Schichtdicke (Präparat und Folie) ist nun verständlich: Nur die energiereichsten β -Teilchen, welche bei den verwendeten Schichtdicken nur selten in der Schicht absorbiert werden, können aus der Wand ins andere Zählrohr zurückgestreut werden.

Alle beobachteten Koinzidenzen sind somit innerhalb der Meßgenauigkeit durch Störeffekte erklärt, woraus folgt, daß Konversionselektronen beim ^{87}Rb , wenn überhaupt, sicher nur bei einem sehr geringen Bruchteil der Zerfälle auftreten. Dieser Befund ist im Einklang mit zwei Untersuchungen von anderer Seite: 1. CURRAN und Mitarbeiter [5] suchten in einem Proportionalzählrohr vergeblich nach der Röntgenstrahlung,

die der Emission von Konversionselektronen folgen muß. 2. MCGREGOR und WIEDENBECK [23] verglichen in einem 4π -Zählrohr die Koinzidenzraten beim ^{87}Rb mit denen beim ^{35}S (reine β -Strahlung mit einer oberen Grenzenergie von $E_0 = 169 \text{ keV}$) und beim ^{199}Au (drei β -Spektren und drei γ -Linien, Konversionselektronen bei rund 40% der Zerfälle). Der Vergleich zeigte, daß ^{87}Rb keine Konversionselektronen emittiert.

Das ^{87}Rb besitzt somit keinen konvertierten γ -Übergang. Unkonvertierte γ -Strahlung andererseits wurde bei keiner der zahlreichen Untersuchungen des Rb gefunden. (Eine etwa bisher nicht nachgewiesene sehr energiearme γ -Strahlung hätte bei der Untersuchung durch CURRAN gefunden werden müssen, wenn sie bei einem merklichen Bruchteil der Zerfälle aufträte).

^{87}Rb emittiert also weder Konversionselektronen noch γ -Quanten. Sein β -Zerfall führt somit direkt auf den Grundzustand des ^{87}Sr .

III. Neubestimmung der Halbwertszeit des ^{87}Rb .

1. Einleitung.

Die neueren Bestimmungen der spezifischen Aktivität des ^{87}Rb wurden meist in 2π - oder 4π -Geometrie durchgeführt (s. Tabelle 1).

Mißt man in 2π -Geometrie, so wird die Messung durch zwei gegenläufige Effekte gefälscht: 1. Rückstreuung aus der Unterlage, 2. Absorption im Präparat. Je nachdem, welcher dieser beiden Effekte überwiegt, wird die Zählrate größer oder kleiner als die Zerfallsrate. Eine Korrektur ist schwierig: Die in der Literatur mitgeteilten Rückstreuungskoeffizienten weichen sehr voneinander ab, da sie stark von der Geometrie und anderen Versuchsbedingungen abhängen, und zudem könnte beim Rb wegen der ungewöhnlichen Form des β -Spektrums die Rückstreuung von der bei anderen β -Strahlern gemessenen erheblich abweichen. Eine Messung der Einflüsse von Rückstreuung und Absorption schien nicht einfach, da beide stets zusammen auftreten.

In 4π -Geometrie dagegen fälscht die Rückstreuung die Messung nicht: Es ist gleichgültig, ob ein β -Teilchen im „oberen“ oder „unteren“ Zählrohr oder in beiden zugleich registriert wird. Die Messung wird hier lediglich durch Absorption von β -Teilchen in Präparat und Unterlage gefälscht, und die Zählrate ist stets kleiner als die Zerfallsrate. Eine Korrektur erschien hier einfach: Macht man Folien und Präparate immer dünner, so sollte man schließlich auf die spezifische Zählrate bei der Dicke Null, d. h. auf die wahre spezifische Zerfallsrate extrapolieren können. — Deshalb wurde im 4π -Zählrohr (Fig. 1) gemessen.

2. Apparatur und Meßverfahren.

Um den Nulleffekt zu verringern, wurde ein 4π -Zählrohr aus Elektrolytkupfer* hergestellt und allseitig mit 5 cm Blei und 10 cm Eisen abgeschirmt. Der Nulleffekt sank dadurch auf etwa 70 Zählstöße/min gegenüber 85/min in der in Teil II beschriebenen Anordnung. Die bedampfbare Folienfläche wurde auf 20 cm² erhöht. Die gesamte elektronische Apparatur war durch einen FARADAY-Käfig gegen elektromagnetische Störimpulse abgeschirmt.

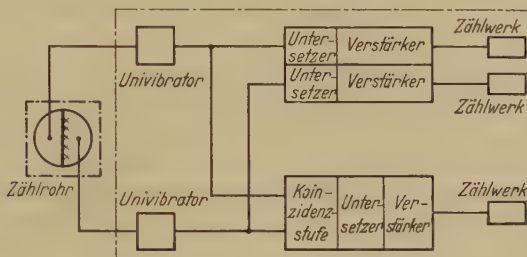


Fig. 2. Blockschaltbild der Zählordnung.

Bei jeder Folie wurden vor und nach dem Bedampfen mit RbCl drei Messungen gemacht, und zwar wurden bestimmt

1. mit parallel geschalteten Untersetzern die Zählrate

$$\dot{N} = \dot{N}_o + \dot{N}_u - \dot{N}_k \quad (\text{s. S. 569}),$$

2. mit drei Zählvorrichtungen gleichzeitig die Einzelwerte von $\dot{N}_o$, $\dot{N}_u$ und $\dot{N}_k$ zur Kontrolle der ersten Messung und zum Vergleich mit der dritten,

3. die Zählraten $\dot{N}'_o$ und $\dot{N}'_u$, die man im oberen und unteren Zählrohr erhält, wenn jeweils das andere außer Betrieb gesetzt ist (Zählrohr und Mantel auf gleichem Potential).

(Zur Orientierung über die Schaltungen vgl. Fig. 2).

$\dot{N}'_o$ und $\dot{N}'_u$ können von $\dot{N}_o$ und $\dot{N}_u$ verschieden sein, weil sehr dünne Folien die Photonen der Zählrohrentladung durchlassen, auch wenn sie lochfrei sind**. $\dot{N}_o$ und $\dot{N}_u$ enthalten daher Zählstöße, die von Photonen-durchzündungen herrühren, $\dot{N}'_o$ und $\dot{N}'_u$ nicht. Ein Vergleich der Werte $\dot{N}_o$ und $\dot{N}_u$ mit $\dot{N}'_o$ und $\dot{N}'_u$ erlaubt daher, die Photonenkoinzidenzen von anderen zu trennen (genauer s. S. 580).

* Elektrolytkupfer ist im allgemeinen weniger radioaktiv verunreinigt als Hüttenkupfer.

** Reine Zaponfolien von mehr als 30 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ waren im allgemeinen undurchlässig. Nach Aufdampfen von wenigen $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Silber wurden sie oft durchlässig. Das Silber scheint als reflexmindernde Schicht zu wirken.

Jede Messung (vor und nach Bedampfen mit RbCl), die stets von 25 zu 25 V über das ganze Zählplateau mit einer statistischen Genauigkeit von 1% für jeden Punkt durchgeführt wurde, erforderte so eine Meßzeit von einer Woche und mehr. Die zur Auswertung benutzten Werte der Tabelle 2 sind dem Plateau 25 V über dessen Beginn entnommen. Ihre statistische Genauigkeit ist daher besser als 1%.

Bevor die Messungen besprochen werden, seien einige dabei gemachte Beobachtungen erwähnt, die zwar das Endergebnis nicht beeinflussten, deren Kenntnis aber bei ähnlichen Untersuchungen nützlich sein mag.

In den ersten Monaten der Untersuchung befand sich beim Aufdampfen des RbCl keine Kühlfalle im Aufdampfraum. Die im Vakuum glasklaren Schichten wurden bei Lufteinlaß milchig trübe, wie auch von Frau KEMMERICH [18] beschrieben. Unter dem Mikroskop zeigten sich die Folien völlig dicht von stäbchenförmigen Kristallen bedeckt, deren größte Ausdehnung etwa 2μ war. Nach Einbau einer Kühlfalle mit flüssiger Luft änderte sich das Aussehen der Schichten bei Lufteinlaß nicht mehr. Auch bei Aufbewahrung an Luft blieben sie wochenlang völlig klar und trocken und zeigten unter dem Mikroskop keinerlei Struktur. Bei vorsichtigem Behauchen wurden solche Schichten milchig und zeigten unter dem Mikroskop Stäbchenstruktur. Gewicht (und Zählrate) waren vor und nach dem Behauchen gleich, d.h.: das der Schicht beim Behauchen zugeführte Wasser war nach kurzer Zeit restlos wieder verdunstet. Die Schichten waren also nicht eine Spur hygroskopisch. — Daß die Trübung der Schichten nicht mit einer Wasseraufnahme verbunden ist, wurde auch von Frau KEMMERICH [18] festgestellt.

Die Länge des Zählplateaus nahm mit wachsender RbCl -Schichtdicke ab. So betrug sie bei Folie 75 ohne RbCl etwa 100 V, nach der ersten RbCl -Aufdampfung (etwa $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$) noch etwa 75 V und nach der vierten Aufdampfung (etwa $500\mu\text{g}/\text{cm}^2$) nur noch etwa 25 V. An anderen Folien war der Befund ähnlich. Er ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, daß die völlig unhygroskopischen Schichten elektrisch sehr schlecht leiten. Positive Ionen, die aus der Zählrohrentladung auf die Schicht gelangen, werden dann um so langsamer aus der Silberunterlage heraus neutralisiert, je dicker die Schicht ist. So können Anhäufungen positiver Ionen, die zu Feldemission führen, bei um so kleinerer Zählrohrspannung entstehen, je dicker die Schicht ist. Die Feldemission aber ergibt Nachentladungen, die bei genügender Zahl das Plateau verkürzen. Ähnliche Effekte sind ja von oxydiertem Aluminium bekannt (MALTER-Effekt [21], [23]).

Der Beginn des Plateaus stieg in den ersten 2 Std einer Messung meist um etwa 40 V an und blieb dann konstant. Wurde das Zählrohr über Nacht abgeschaltet, so lag anschließend der Plateaubeginn wieder tiefer und stieg erneut mit der Zeit an. Dieser schon vielfach mitgeteilte Befund ist erklärlich, wenn man annimmt, daß auch im selbstlöschenden Zählrohr die Entladung sich durch Photoeffekt an der Wand ausbreitet [16]. Die Einsatzspannung kann dann erst konstant werden, wenn die Photoempfindlichkeit der Wand konstant geworden ist, d.h. wenn unter dem Einfluß der Entladungen Gleichgewicht der an der Wand adsorbierten Moleküle eingetreten ist.

Oft sank zu Beginn einer Messung die Zählrate etwas ab (bis zu 4%) und wurde erst nach etwa einer Stunde konstant. Dies dürfte auf der erwähnten Verschiebung der Einsatzspannung beruhen.

3. Messungen.

Absorptionsverluste sind um so kleiner, je dünner Folie (Zapon plus Silber) und Präparat sind. Deshalb wurde erwartet, daß die gemessene spezifische Aktivität $\dot{n}$ um so höher liegen würde, je dünner bei gleicher RbCl-Dicke die Folie war. Statt dessen fanden sich die größten spezifischen Aktivitäten bei relativ dicken Folien. Bei sehr dünnen Folien, die beiderseits mit nur 3 bis $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Silber bedampft waren, waren die gemessenen spezifischen Aktivitäten von Folie zu Folie sehr verschieden, auch wenn die Dicken der Folien und der aufgedampften Schichten praktisch übereinstimmten. Schließlich fand sich eine Folie (Folie 63), bei der sich aus völlig reproduzierbaren Messungen eine negative Anzahl von Photonenkoinzidenzen errechnete. Dieser zunächst schwer verständliche Befund führte zur Lösung aller Widersprüche. Er sei deshalb im einzelnen besprochen.

Zählt man zunächst in einem Zählrohr allein die Zählrate $\dot{N}'_o$ oder $\dot{N}'_u$, während in dem anderen der Zähldraht auf Mantelpotential liegt, und schaltet dann auch das andere ein, so steigt im allgemeinen die Zählrate im zuerst allein betriebenen Zählrohr an, weil sie durch Photonendurchzündungen vergrößert wird; es ist $\dot{N}_o > \dot{N}'_o$ und $\dot{N}_u > \dot{N}'_u$. Bei Folie 63 ging umgekehrt die Zählrate in jedem Zählrohr beim Einschalten des anderen zurück. Hier war $\dot{N}_o < \dot{N}'_o$ und $\dot{N}_u < \dot{N}'_u$, woraus sich eine scheinbar negative Zahl von Durchzündungen ergab. Dies war kaum anders erklärbar als dadurch, daß a) die Folie 63 für die Entladungsphotonen undurchlässig war, und b) beim Einschalten des zweiten Zählrohres sich der Feldverlauf im ersten änderte, d. h. daß die Zähldrähte einen „Durchgriff“ durch die Folie zeigten. Das aber ist nur möglich, wenn eine Folie keine ausreichende elektrische Leitfähigkeit besitzt.

Der Einfluß der Leitfähigkeit der Folie auf die Messung mußte deshalb genauer untersucht werden. Es zeigte sich, daß ungenügende Leitfähigkeit der Folie sich im Zählrohr experimentell in drei Erscheinungen äußert: 1. Bei schlecht leitender Folie liegt die Einsatzspannung um rund 100 V höher als bei gut leitender Folie. 2. Zählt man zunächst in einem Zählrohr allein, während in dem anderen der Draht auf Mantelpotential liegt, und schaltet dann das andere zusätzlich ein, so steigt bei schlecht leitender Folie die Einsatzspannung um rund 25 V. 3. Zählt man zunächst in einem Zählrohr allein, während in dem anderen der Draht auf Mantelpotential liegt, so sinkt, wie oben beschrieben, bei schlecht leitender Folie die Zählrate, sobald man Spannung an das andere Zählrohr legt. *Bei schlecht leitender Folie mißt man also zu wenig Teilchen.*

Dieser letztere entscheidende Effekt wird meist dadurch überdeckt, daß bei den meisten der dünnen Folien Photonendurchzündungen auftreten, wenn beide Zählrohre auf Zählspannung liegen. Er zeigt sich

dann nur, wenn eine Folie, wie Folie 63, zufällig zugleich schlecht leitet und für die Entladungsphotonen genügend undurchlässig ist. Einmal bekannt, läßt er sich an jeder schlecht leitenden Folie nachweisen: Man zählt zunächst in einem Zählrohr allein, während im anderen der Draht auf Mantelpotential liegt. Legt man dann an diesen Draht eine Spannung unterhalb der Einsatzspannung, so sinkt im ersten Zählrohr die Zählrate ab.

Die gemessene spezifische Aktivität $\dot{n}$ steigt somit unter sonst gleichen Umständen mit zunehmender Leitfähigkeit der Folie (bis zu einem bestimmten Grenzwert) an, so daß die gemessene Aktivität in gewissem Sinne ein Maß der Leitfähigkeit der Folie ist. Danach leitete Folie 63,

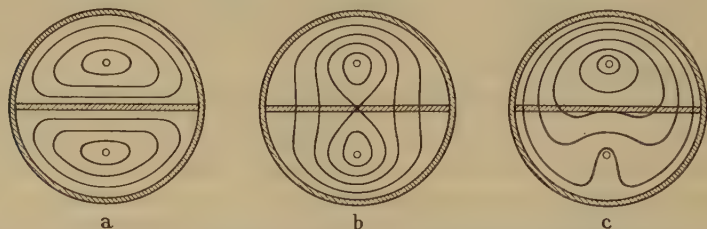


Fig. 3 a—c. Ungefäher Verlauf der Äquipotentialflächen im 4π -Zählrohr. a Bei leitender Folie; b bei nicht-leitender Folie (beide Zählrohre auf Spannung); c bei nicht-leitender Folie (ein Zählrohr auf Spannung).

verglichen mit anderen, schon relativ gut: an ihr wurde $\dot{n} = 30,3/\text{min} \cdot \text{mg}$ RbCl gemessen, während andere versilberte Folien Werte von $\dot{n}$ ergaben, die knapp über 20 lagen. Um die Leitfähigkeit zu verbessern, wurden bei Folie 63 nachträglich auf der RbCl-freien Seite zusätzlich $14,4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Silber aufgedampft. Danach sank die Einsatzspannung um 75 V, die Einsatzspannung jedes der beiden Zählrohre war jetzt unabhängig von der Spannung am anderen, und trotz der jetzt stärkeren Absorption in der Folie stieg die spezifische Aktivität von $\dot{n} = 30,3$ auf $\dot{n} = 31,7$ β -Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl.

Die mehr oder weniger gute Leitfähigkeit der Folien wurde anfangs nicht für sehr entscheidend gehalten*, weil die Zahl der Zählstöße pro Sekunde klein war und deshalb erwartet wurde, daß die bei einem Zählstoß auf die Folie gelangenden positiven Ionen auch bei relativ geringer Leitfähigkeit bis zum nächsten Zählstoß neutralisiert sein würden. Wahrscheinlich werden auch die beobachteten Effekte nicht durch die schlechte Leitfähigkeit an sich, sondern durch die Potentialverteilung bewirkt, die sie erzeugt. Fig. 3 zeigt den ungefähren Verlauf der Äquipotentialflächen in den Zählrohren für die Extremfälle: a) ideal leitende Folie,

* Natürlich weiß man seit einer Reihe von Jahren, daß Unterlagen von β -Präparaten, zumal im Zählrohr, leitend gemacht werden müssen. Die Literatur zeigt jedoch, daß im allgemeinen keineswegs klar ist, wie *gut* die Unterlagen, zumindest bei energiearmen β -Strahlern, leiten müssen.

b) und c) nicht-leitende Folie, wenn b) an beiden Zählrohren, c) nur an einem Zählrohr Spannung liegt. Fig. 3 läßt erkennen, daß im Fall b die Einsatzspannung höher als im Fall a sein und daß sie in jedem der beiden Zählrohre in der beschriebenen Weise von der Spannung am anderen abhängen muß. Setzen sich im Fall b positive Ionen auf die Folie, so kehrt in Folienmitte das ohnehin kleine Feld sein Vorzeichen um, und energiearme Elektronen werden nicht mehr angezeigt. Im Fall c werden diese Zählverluste kleiner.

Im allgemeinen leiteten aufgedampfte Silberschichten erst ab $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ausreichend gut; nur in Ausnahmefällen genügten dünnere Schichten.

Um organische Präparatenträger leitend zu machen, wird meist Silber benutzt. Zur Erzeugung sehr dünner leitender Schichten ist es jedoch sicher besonders ungeeignet. Wegen seiner hohen Oberflächenbeweglichkeit schlägt es sich zunächst in Form voneinander isolierter Inselchen nieder. Wachsen diese Inseln beim Bedampfen bis zur gegenseitigen Berührung, so springt die Leitfähigkeit fast momentan um mehrere Zehnerpotenzen. Ein eindeutiger Zusammenhang zwischen Leitfähigkeit und Aufdampfbedingungen konnte nicht festgestellt werden (vgl. auch [11]).

Nach den beschriebenen Messungen stand fest, daß eine Bestimmung der spezifischen Aktivität des Rb nur bei ausreichend leitenden Folien sinnvoll war. Deshalb wurden nur Messungen an solchen Folien ausgewertet, die in der oben beschriebenen Weise auf ausreichende Leitfähigkeit geprüft waren. Die Bedampfung mit rund $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Ag auf beiden Seiten* und die rund eine Woche später, nach Messung der Nulleffekte, erfolgende RbCl-Bedampfung überstanden im allgemeinen nur Folien mit mindestens rund $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Zapon. Dadurch war eine unerwünscht hohe Mindestdicke der Folien und damit der Mindestabsorption von β -Teilchen gegeben. Trotzdem lag bei diesen leitenden Folien die gemessene spezifische Aktivität höher als bei allen schlecht leitenden Folien, die zum Teil erheblich dünner waren. (Verwendet wurden auch die Messungen an einer Folie, die mit nur $8,3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Ag auf jeder Seite gut leitete, zumal diese Folie 75 die einzige war, die vier RbCl-Bedampfungen nacheinander überstand, ehe sie platzte. Leider fiel bei dieser Folie die erste RbCl-Bedampfung etwas zu stark aus.)

Tabelle 2 und Fig. 4 zeigen die an drei gut leitenden Folien gewonnenen Meßergebnisse. Bei jeder der drei Folien beträgt die bei der jeweils dünnsten RbCl-Schicht gemessene spezifische Aktivität (Fig. 4a) $\dot{n} = 35$ β -Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl. Die daraus berechnete Halbwertszeit stellt eine obere Grenze dar, da $\dot{n}$ noch nicht für Absorption korrigiert ist. Somit folgt $T < 5,2 \cdot 10^{10}$ a.

* Ob eine Ag-Bedampfung auf nur einer Seite genügt hätte, wurde nicht geprüft. Bei Messungen von W. BECKMANN und E. HUSTER [2] an Ac-Präparaten reichte eine einseitige Bedampfung aus. Die dort verwendeten Folien waren allerdings kleiner als 1 cm^2 .

Die an Folie 75 gemessene spezifische Aktivität ist in Fig. 4a auf Präparatdicke Null extrapoliert. Diese Extrapolation setzt voraus, daß beim Rb die Absorption auch bei sehr dünnen Schichten noch merklich ist und nicht unterhalb einer gewissen Schichtdicke vernachlässigt werden kann.

Für die Richtigkeit dieser Annahme sprechen mehrere Gründe: 1. Fig. 4a zeigt, daß die spezifische Aktivität mit abnehmender Präparatdicke immer steiler ansteigt. 2. Unabhängig von der Messung läßt schon der ungewöhnlich hohe Anteil sehr energiearmer Elektronen im Rb- β -Spektrum vermuten, daß es „ β -dünne“ Schichten beim Rb gar nicht

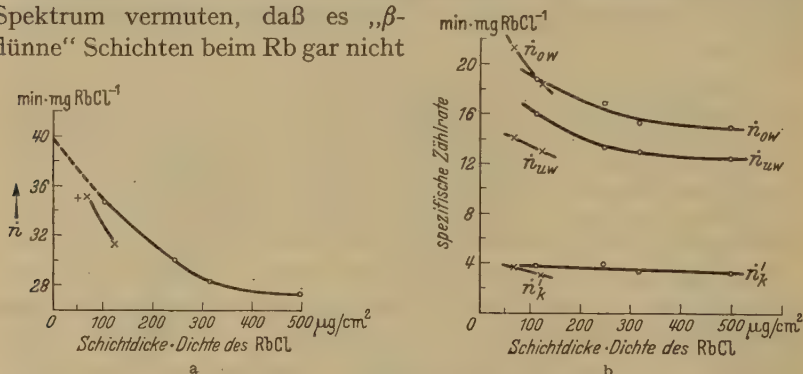


Fig. 4a u. b. a Spezifische Aktivität des Rb auf leitenden Folien, b Spezifische Zählraten des Rb auf leitenden Folien (Kreise: Folie 75; Kreuze: Folie 78).

gibt und deshalb die spezifische Aktivität $\dot{n}$ bis zu verschwindender Präparatdicke herab ansteigt. 3. Eine weitere Stütze für die gewählte Extrapolation liefert die zunächst erstaunlich scheinende Tatsache, daß die an den drei Folien für die jeweils dünnste RbCl-Schicht gefundenen Werte von $\dot{n}$ trotz verschiedener RbCl- und Foliendicken praktisch übereinstimmen. Dies wird verständlich, wenn man annimmt, daß die Absorption von β -Teilchen nur von der zu durchsetzenden Schichtdicke, nicht aber oder nur wenig vom Absorbermaterial abhängt. Dann gilt, wenn μ der Absorptionskoeffizient, $\dot{N}_w$ die wahre Zerfallsrate und d_P und d_F die Dicken von Präparat und Folie sind: Jedes der $\dot{N}_w$ Teilchen hat im Mittel die halbe Präparatdicke $d_P/2$ zu durchlaufen. Auf die Folie treffen nur $\dot{N}_w/2$ -Teilchen, müssen aber die volle Foliendicke d_F durchsetzen. Nimmt man an, daß bei den vorliegenden Dicken die Absorption noch proportional der Dicke ist, so ist die absorbierte Teilchenzahl gleich $\mu \left(\dot{N}_w \frac{d_P}{2} + \frac{\dot{N}_w}{2} d_F \right) = \frac{1}{2} \mu \dot{N}_w (d_P + d_F)$, also proportional der Dicke d der Gesamtschicht*. Bei den drei Messungen, die überein-

* Auch wenn Absorption und Schichtdicke nicht mehr linear zusammenhängen, sollte die Absorption nur von $d = d_P + d_F$ abhängen.

Tabelle 2. *Spezifische Zählraten an leitenden Folien.* (Die in den letzten vier Spalten benutzten Symbole sind im Text erklärt.)

Zeichen in Fig. 4a und 4b	Folien-Nummer	Zapfenschicht in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	Silberbelag auf Präparatseite in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	Silberbelag auf Folienrückseite in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	RbCl-Schicht		Gesamtmassenbelegung in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	Gemessene spezifische Aktivität $\dot{n}$ (min · mg RbCl) ⁻¹	$\dot{n}_0 \cdot w = \dot{n}_0 - \frac{1}{2} \dot{n}_k$ (min · mg RbCl) ⁻¹	$\dot{n}_{0w} = \dot{n}_0 - \frac{1}{2} \dot{n}_k$ (min · mg RbCl) ⁻¹	$\dot{n}_k'$ (min · mg RbCl) ⁻¹	$\dot{n}_{0w} - \dot{n}_k' = \dot{n}_0 - \frac{1}{2} \dot{n}_k + 2 \dot{n}_k$ (min · mg RbCl) ⁻¹
					Gewicht in mg	Massenbelegung in $\mu\text{g}/\text{cm}^2$						
○	75	35,0	8,3	8,3	$2,077 \pm 0,02$	107	158,6	34,7	18,7	15,9	3,8	2,8
					4,781	246		30,0	16,8	13,3	3,9	3,5
					6,133	316		28,2	15,1	12,9	3,3	2,2
					9,6	495		27,2	14,8	12,4	3,2	2,4
+	71	28,5	37,0	48,2	$1,014 \pm 0,01$	52,3	166,0	35,3				
×	78	35,2	35,2	27,8	$1,232 \pm 0,01$	65,7	163,9	35,0	21,2	14,0	3,7	7,2
					2,316	119		31,3	18,2	13,0	3,1	5,2

stimmend $\dot{n} = 35$ ergaben (Fig. 4a), stimmten zufällig die Gesamtdicken d auf $\pm 2,5\%$ überein (Tabelle 3). Dadurch wird obige Überlegung gestützt, und man wird annehmen dürfen, daß auch bei dünneren als den hier benutzten Schichten die Zahl der absorbierten Teilchen nahezu proportional zu d ist.

Die den angeführten Gründen entsprechende Extrapolation auf Präparatdicke $d_P = 0$ in Fig. 4a führt auf $\dot{n} = (40 \pm 1) \beta$ -Teilchen/min · mg RbCl.

Nun ist weiter noch auf Foliendicke $d_F = 0$ zu extrapolieren. Ist die Extrapolation auf $d_P = 0$ richtig, so absorbierte bei Folie 75 die etwa $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ starke RbCl-Schicht $(40 \pm 1) - 35 = (5 \pm 1) \beta$ -Teilchen je min · mg RbCl. Nach der obigen Überlegung wurden dann in der etwa $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ starken Folie weitere $(2,5 \pm 0,5)$, in Folie und Präparat zusammen also $(7,5 \pm 1,5) \beta$ -Teilchen/min · mg RbCl absorbiert. Der gleiche Wert ergibt sich auch bei den Folien 71 und 78, die ebenso wie Folie 75 eine Gesamtmassenbelegung von etwa $160 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ hatten.

Damit ergibt sich die wahre spezifische Aktivität zu $\dot{n}_w = (42,5 \pm 1,5) \beta$ -Teilchen/min · mg RbCl.

Daraus folgt, wenn man den Anteil des ^{87}Rb im natürlichen Rb mit 27,85% annimmt [26], eine Halbwertszeit des ^{87}Rb von

$$T = \left(4,3 \begin{matrix} +0,3 \\ -0,2 \end{matrix} \right) \cdot 10^{10} \text{ a.}$$

Die Fehlergrenzen sind hier größer angesetzt worden als bei der spezifischen Aktivität, und zudem nach beiden Seiten verschieden. Das wird im folgenden begründet werden.

Zähl- und Wägungsfehler sind gegen die für die absorbierte Teilchenzahl angenommenen Fehlergrenzen zu vernachlässigen. Die angegebene Halbwertszeit ist also so genau wie die vorgenommene Extrapolation auf Präparat- und Foliendicke Null. Diese Korrektur wird, außer durch die bereits angeführten Gründe, dadurch gestützt, daß man bei der dickeren RbCl-Schicht auf Folie 78 eine Halbwertszeit von $T = 4,4 \cdot 10^{10}$ a erhält, wenn man in gleicher Weise korrigiert. Trotz allem aber ist die Extrapolation in gewissem Ausmaß unsicher; deshalb wären Messungen an möglichst mit ^{87}Rb angereicherten Präparaten auf wesentlich dünneren leitenden Folien wünschenswert.

Die Absorptionskorrektur könnte sowohl einen zu kleinen wie einen zu großen Wert von $\dot{n}_w$ ergeben haben. Nach oben läßt sie sich durch die spezifischen Einzelzählraten in den beiden Zählrohren (Fig. 4b) kontrollieren. Die dort dargestellten Werte wurden auf folgende Weise erhalten: Man mißt einmal mit parallel geschalteten Zählrohren die spezifische Zählrate $\dot{n} = \dot{n}_o + \dot{n}_u - \dot{n}_k$, wobei $\dot{n}_k$ alle Koinzidenzen, unabhängig von ihrer Ursache, enthält. Zum andern mißt man die spezifischen Zählraten $\dot{n}'_o$ und $\dot{n}'_u$, wobei jeweils nur ein Zählrohr in Betrieb ist. In $\dot{n}'_o$ und $\dot{n}'_u$ sind deshalb nur Zählstöße von *nicht* durch Photonen gezündeten Koinzidenzen enthalten, deren Zahl $\dot{n}'_k$ nicht direkt gemessen werden kann. Da aber $\dot{n}$ von Zahl und Ursache der Koinzidenzen nicht abhängt, ist $\dot{n} = \dot{n}'_o + \dot{n}'_u - \dot{n}'_k = \dot{n}_o + \dot{n}_u - \dot{n}_k$ und somit $\dot{n}'_k = \dot{n}'_o + \dot{n}'_u - \dot{n}$. Aus den Messungen ergab sich $\dot{n}'_k \approx 3,5$ (min $\cdot$ mg RbCl) $^{-1}$. Diese nicht durch Photonen verursachten Koinzidenzen werden durch β -Teilchen gezündet, die aus der Zählrohrwand zurückgestreut werden (s. S. 571). Nimmt man an, daß in jedem der beiden Zählrohre gleichviel β -Teilchen zurückgestreut werden, so erhält man die Zahlen der ohne Rückstreuung aus der Wand in jedes Zählrohr gelangenden Teilchen zu $\dot{n}_{ow} = \dot{n}'_o - \frac{\dot{n}'_k}{2}$ und $\dot{n}_{uw} = \dot{n}'_u - \frac{\dot{n}'_k}{2}$ (Fig. 4b).

Ohne Rückstreuung in der Folie und ohne Absorption in Folie und Präparat würden beide Werte gleich $\frac{\dot{n}_w}{2}$, der halben spezifischen Zerfallsrate, sein. Statt dessen ist $\dot{n}_{ow} = \frac{\dot{n}_w}{2} + \dot{n}_R - \dot{n}_{AP}$ und $\dot{n}_{uw} = \frac{\dot{n}_w}{2} - \dot{n}_R - \dot{n}_{AP} - \dot{n}_{AF}$, wobei $\dot{n}_R$ die aus der Folie ins obere Zählrohr zurückgestreute, $\dot{n}_{AF}$ die in der Folie, $\dot{n}_{AP}$ die im Präparat in einer Richtung absorbierte Zahl von Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl ist. Bei dünnen Folien ist $\dot{n}_R$ klein und folglich $\dot{n}_{AP}$ in erster Näherung in beiden Richtungen gleich, so daß man $\dot{n}_{ow} - \dot{n}_{uw} = \dot{n}_{AF} + 2\dot{n}_R$ erhält. Bei Folie 75 betrug $\dot{n}_{ow} - \dot{n}_{uw}$ etwa 3, bei der stärker mit Silber bedampften Folie 78 etwa 7 β -Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl (Tabelle 2). $\dot{n}_{AF}$ allein kann höchstens so groß sein wie diese Werte, da $\dot{n}_R \geq 0$ ist. Das heißt: die oberen Grenzen für Absorptionsverluste

in der Folie sind bei Folie 75 etwa 3, bei Folie 78 etwa 7β -Teilchen je $\text{min} \cdot \text{mg}$ RbCl. Die Messungen wurden mit $\dot{n}_{AF} = 2,5$ für Folie 75 und $\dot{n}_{AF} = 5$ für Folie 78 korrigiert.

Man sieht, daß eine größere als die vorgenommene Absorptionskorrektur kaum noch mit den Messungen vereinbar ist. Aus diesem Grunde ist die obere Fehlergrenze der angegebenen Halbwertszeit etwas größer als die untere gewählt worden. Aus dem der unteren Fehlergrenze entsprechenden Wert von T würde bereits $\dot{n}_R < 0$ folgen.

Wenn obige Interpretation der Versuche korrekt ist, so sollte die Rückstreuung aus den Folien nur gering sein: Für Folie 75 (etwa $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) ergibt sich $\dot{n}_R \approx 0,25$, für Folie 78 (etwa $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) $\dot{n}_R \approx 1$ Teilchen je $\text{min} \cdot \text{mg}$ RbCl.

IV. Kritischer Vergleich mit anderen Messungen.

1. Messungen in 2π -Geometrie.

Frau KEMMERICH [18] bedampfte Al-Folien mit RbCl und belegte die Innenwand eines Messingzählrohres mit diesen Folien. Bei ihren dünnsten RbCl-Schichten fand sie eine spezifische Aktivität von $\frac{\dot{n}}{2} = 24,8$ Teilchen/ $\text{min} \cdot \text{mg}$ RbCl. Da dieser Wert aus allen anderen weit herausfällt (Tabelle 1), wurde die Messung 1952 von KANTER [17] wiederholt und der Befund bestätigt. Nun wird, wie in Teil II dieser Arbeit gezeigt, entgegen der Annahme von Frau KEMMERICH beim β -Zerfall des ^{87}Rb nur ein Elektron je Zerfall emittiert, und damit folgt aus ihrer Messung mit dem von ihr gemessenen Rückstreuungskoeffizienten von $\gamma = 10\%$ eine Halbwertszeit von $T = 4,0 \cdot 10^{10}$ a. [Der Rückstreuungskoeffizient ist der relative Überschuß $\dot{n}_R$ von Teilchen über den Wert $\frac{\dot{n}_w}{2}$, den man ohne Rückstreuung im Halbraum (Raumwinkel $\Omega = 2\pi$) messen würde; d.h. es ist $\gamma = \frac{\dot{n}_R}{\dot{n}_w/2}$]. γ wurde von Frau KEMMERICH im 4π -Zählrohr (Fig. 1) gemessen. Zuerst bestimmte sie im „oberen“ Zählrohr die Zählrate an einem Präparat, welches auf eine versilberte Zaponfolie aufgedampft war, wobei, soweit ersichtlich, sowohl die Absorption im Präparat als auch die Rückstreuung aus der Folie als vernachlässigbar klein angesehen wurden. Dann unterlegte sie die Folie mit einer Metallschicht, welche der bei der Zählung in 2π -Geometrie benutzten Zählrohrwand entsprach. Die Zählrate im oberen Zählrohr stieg daraufhin um 10% . Daraus schloß sie, daß von der in 2π -Geometrie gemessenen Zählrate 10% , d.h. $2,5$ Teilchen/ $\text{min} \cdot \text{mg}$ RbCl, abzuziehen seien.

Eine solche Messung liefert jedoch nicht die Rückstreuung aus der Metallunterlage, sondern nur den Überschuß dieser Rückstreuung über

die schon vorher vorhandene Rückstreuung aus der Wand des unteren Zählrohres und aus der Folie. Wie aus den in Teil III beschriebenen Messungen hervorgeht, werden aus der Wand etwa 1,8 Teilchen (s. S. 580), aus einer etwa $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ starken Folie etwa 1 Teilchen (s. S. 581), zusammen also etwa 2,8 Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl zurückgestreut. Zusammen mit den von Frau KEMMERICH gefundenen 2,5 Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl ergibt das für 2π -Geometrie eine Rückstreuung von $(5,3 \pm 1)$ Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl, die von ihrem Meßwert zu subtrahieren sind. Weiter muß aber noch für Absorption im Präparat korrigiert werden, wodurch die Korrektur für Rückstreuung zum Teil wieder ausgeglichen wird. Am sichersten korrigiert man bei der größten Präparatdicke, bei der Frau KEMMERICH die angegebene Aktivität maß, bei etwa $75 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, da bei geringeren Dicken ihre Messung ungenauer war. (Sie benutzte eine gewöhnliche Analysenwaage; bei $75 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ betrug die Masse des Präparates etwa 4 mg.) Nach den Ausführungen auf S. 579 absorbiert eine Schicht von $75 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ in 4π -Geometrie rund 3,8 Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl. In 2π -Geometrie tritt Absorption nur in einer Richtung ein. Berücksichtigt man dies und die Tatsache, daß infolge der Rückstreuung aus der Metallunterlage mehr als die Hälfte der β -Teilchen das Präparat durchlaufen, so folgt, daß im Präparat etwa 2,5 Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl absorbiert wurden. Damit folgt aus der Messung von Frau KEMMERICH eine wahre spezifische Aktivität von $\dot{n}_w = 2(24,8 - 5,3 + 2,5) = 44$ β -Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl und eine Halbwertszeit von $T \approx 4,2 \cdot 10^{10}$ a.

Wäre kein β -Teilchen im Präparat absorbiert worden, so hätte Frau KEMMERICH $\frac{\dot{n}}{2} = 24,8 + 2,5 = 27,3$ messen müssen. Das sind 124% von $\frac{\dot{n}_w}{2} = 22$. Der Rückstreukoeffizient ergibt sich daraus zu $\gamma = 24\%$.

Korrigiert man statt dessen mit dem von CHARPAK und SUZOR [30], [4] für verschiedene β -Strahler auf Al-Unterlage gefundenen $\gamma = 33\%$ und der gleichen Absorption wie oben, so erhält man $\dot{n}_w = 41$ und $T = 4,45 \cdot 10^{10}$ a.

Diese gute Übereinstimmung zwischen dem von Frau KEMMERICH in 2π -Geometrie gemessenen und dem in 4π -Geometrie gemessenen Wert von $T = \left(4,3 \begin{smallmatrix} +0,3 \\ -0,2 \end{smallmatrix}\right) \cdot 10^{10}$ a läßt nicht erwarten, daß die Halbwertszeit des ^{87}Rb außerhalb der angegebenen Fehlergrenzen liegt.

CURRAN und Mitarbeiter [5] erhielten in 2π -Geometrie an Präparaten, die aus Lösungen auskristallisiert waren, eine spezifische Aktivität von $\frac{\dot{n}}{2} = 14,7$ β -Teilchen/min $\cdot$ mg RbCl (unkorrigiert). Auskristallisierte Präparate haben eine weit gröbere Kristallstruktur als aufgedampfte und absorbieren entsprechend stärker. Der Vergleich mit dem Wert von Frau KEMMERICH zeigt, welche Absorptionsverluste beim Rb unter Umständen auftreten können.

EKLUND [6] und FLINTA und EKLUND [8] arbeiteten mit einem Zählrohr mit Netzkathode. Die außerhalb des Zählrohres befindlichen Präparate waren auf recht dicke Zaponfolien ($900 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ [8]) aufgedampft, von denen nicht angegeben wird, ob sie metallisiert waren. Der erfaßte Raumwinkel betrug im ersten Fall etwa 3,5%, im zweiten etwa 5,5% von 4π . Bei den dünnsten Präparaten lagen deshalb die Zählraten nur um einige Teilchen/min über dem Nulleffekt und dürften, als kleine Differenzen großer Zahlen, relativ unsicher sein. Die Unsicherheit der Korrekturen für Rückstreuung aus Folie und Wand und für Absorption im Präparat und im Gas zwischen Präparat und Netzzählrohr ($135 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) ist schwer abzuschätzen.

2. Messungen in 4π -Geometrie.

McGREGOR und WIEDENBECK [23], [24] fanden in einem 4π -Zählrohr (anderer Bauart als in Fig. 1) eine Halbwertszeit von $T = 6,2 \cdot 10^{10}$ a. Die Dicke der Folien betrug für Zapon und aufgedampftes Aluminium zusammen nur etwa $25 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Nach den auf S. 577 beschriebenen Versuchen ist es sehr unwahrscheinlich, daß diese Folien ausreichend leiteten. Die gemessene Aktivität dürfte daher zu klein ausgefallen sein.

LEWIS [20] untersuchte das β -Spektrum und die spezifische Aktivität des Rb mit einem Szintillationszähler, der aus RbJ(Tl) bestand. Der Zähler zeigte alle β -Teilchen mit Energien oberhalb 17,5 keV an. LEWIS zeichnete den unter Voraussetzung eines erlaubten Übergangs berechneten und deswegen stark gekrümmten Kurieplot und extrapolierte ihn bis zur Energie Null. Nach dieser Extrapolation haben etwa 23% der β -Teilchen des Rb Energien unter 17,5 keV. Die dieser Extrapolation entsprechende Korrektur der gemessenen spezifischen Aktivität führt auf eine Halbwertszeit von $T = 5,9 \cdot 10^{10}$ a, doch scheint zur Zeit die Form des Rb- β -Spektrums weder experimentell noch theoretisch so gut gesichert zu sein, daß die Extrapolation von LEWIS nicht noch beträchtliche Fehler enthalten könnte.

Aus den in Teil II mitgeteilten Messungen hatten wir früher geschlossen [1], daß das ^{87}Rb eine Halbwertszeit von $T \geq 4,8 \cdot 10^{10}$ a habe. Bei diesen Messungen wurden durchweg relativ dicke, gut leitende Folien verwandt, so daß keine Zählverluste wegen schlechter Leitfähigkeit auftraten. In Übereinstimmung mit Frau KEMMERICH [18] war jedoch angenommen worden, daß die Absorption in den Präparaten zu vernachlässigen sei, was sich später als falsch erwies.

Diese Betrachtungen zeigen, daß die bisherigen Bestimmungen der Halbwertszeit des Rb fast durchweg zu hohe Werte ergaben, zum Teil weil die Absorption in den Präparaten unterschätzt wurde, zum Teil weil ungenügende Leitfähigkeit der Präparatunterlagen zu Zählverlusten

führte, zum Teil aus anderen oben dargelegten Gründen. — Zu dem gleichen Ergebnis wie die vorliegende Untersuchung führt lediglich die von KANTER bestätigte Messung von Frau KEMMERICH. Hier war nur die bisherige Interpretation der Messung falsch.

Herrn Dozent Dr. HUSTER danke ich für die Anregung dieser Arbeit, ihm und Herrn Professor WALCHER für wertvolle Ratschläge, der Deutschen Forschungsgemeinschaft für apparative Hilfe und der Fachvereinigung Metallierzbau e.V., Düsseldorf, für materielle Unterstützung der Arbeit.

Literatur.

- [1] BÄHNISCH, INGBORG, E. HUSTER u. W. WALCHER: *Naturwiss.* **39**, 379 (1952). — [2] BECKMANN, W., u. E. HUSTER: *Z. Naturforsch.* **10a**, 86 (1955). — [3] BELL, P. R., J. M. CASSIDY u. R. C. DAVIS: ORNL-694 (1950). — [4] CHARPAK, G., et F. SUZOR: *C. R. Acad. Sci. Paris* **233**, 1356 (1951). — [5] CURRAN, S. C., D. DIXON and H. W. WILSON: *Phys. Rev.* **84**, 151 (1951). — *Phil. Mag.* **43**, 82 (1952). — [6] EKLUND, S.: *Ark. Mat., Astronom. Fys.*, Ser. A **33**, Nr. 14, 60 (1946). — [7] ENGELKEMEIR, D. W., J. A. SEILER, E. P. STEINBERG, L. WINSBERG u. T. B. NOVEY: *Radiochemical Studies: The Fission Products*, NNES IV, 9, Book 1, S. 70. — [8] FLINTA, J., u. S. EKLUND: *Ark. Fys.* **7**, 401 (1954). — [9] GEESE-BÄHNISCH, I., u. E. HUSTER: *Naturwiss.* **41**, 495 (1954). — [10] HAHN, O., F. STRASSMANN u. E. WALLING: *Naturwiss.* **25**, 189 (1937). — [11] HAMBURGER, L.: *Ann. Phys.* **10**, 789 (1931). — [12] HAXEL, O., u. F. G. HOUTERMANS: *Z. Physik* **124**, 705 (1948). — [13] HAXEL, O., F. G. HOUTERMANS and M. KEMMERICH: *Phys. Rev.* **74**, 1886 (1948). — [14] HEYDEN, M., u. H. KOPFERMANN: *Z. Physik* **108**, 232 (1938). — [15] HOUTERMANS, F. G., O. HAXEL u. J. HEINTZE: *Z. Physik* **128**, 657 (1950). — [16] HUSTER, E., u. E. ZIEGLER: *Phys. Verh.* **5**, 65 (1954). — [17] KANTER, H.: *Marburger Diplomarbeit* 1953. — [18] KEMMERICH, MARIA: *Z. Physik* **126**, 399 (1949). — [19] Vgl. z. B. KLINKENBERG, P. F. A.: *Rev. Mod. Phys.* **24**, 63 (1952). — [20] LEWIS, G. M.: *Phil. Mag.* **43**, 1070 (1952). — [21] MALTER, L.: *Phys. Rev.* **50**, 48 (1936). — [22] MATTAUCH, J.: *Naturwiss.* **25**, 189 (1937). — [23] MCGREGOR, M. H., u. M. L. WIEDENBECK: *Phys. Rev.* **86**, 420 (1952). — [24] MCGREGOR, M. H., u. M. L. WIEDENBECK: *Phys. Rev.* **94**, 138 (1954). — [25] MÜHLHOFF, W.: *Ann. Phys.* (5) **7**, 205 (1930). — [26] NIER, O.: *Phys. Rev.* **79**, 450 (1950). — [27] ORBAN, G.: *Ber. Akad. Wiss. Wien IIa* **140**, 121 (1931). — [28] PAETOW, H.: *Z. Physik* **111**, 770 (1939). — [29] STRASSMANN, F., u. E. WALLING: *Ber. dtsch. chem. Ges.* **71**, B1 (1938). — [30] SUZOR, F., et G. CHARPAK: *J. Phys. Radium* **13**, 1 (1952). — [31] THOMSON, J. J.: *Phil. Mag.* **10**, 584 (1905).

Frau Dr. I. GEESE-BÄHNISCH,
Marburg a. d. Lahn, Physikalisches Institut der Universität.

Lebenslauf

Am 17. 9. 1923 wurde ich als Tochter des Amtsrates RUDOLF BÄHNISCH und dessen Ehefrau BERTA, geb. ZILCHER, in Kassel geboren. Ich bin deutscher Staatsangehörigkeit und evangelischer Konfession. Nach vierjähriger Grundschule in Kassel besuchte ich 6 Jahre die Oberschule für Mädchen, davon 2 Jahre in Kassel und 4 Jahre in Potsdam. Ich beendete meine Schulzeit am 1. 4. 1940 mit der Unterprimareife und nahm an einem einjährigen Lehrgang der Berufsfachschule für technische Zeichnerinnen in Berlin teil. Von 1941 bis 1945 war ich in der elektrotechnischen Industrie als technische Assistentin beschäftigt. Am 22. 2. 1945 legte ich die Nichtschülerreifeprüfung in Berlin ab. Das Studium der Naturwissenschaften begann ich im April 1946 an der Philipps-Universität Marburg a. d. Lahn, studierte 1949/50 an der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen, kehrte 1951 nach Marburg zurück und begann dort in der Folge die vorliegende Arbeit. — Seit dem 10. 4. 1954 bin ich mit dem Studien-Assessor HELMUT GEESE verheiratet.

Meine Hochschullehrer waren die Herren FLÜGGE, HÜCKEL, HUSTER, KRAFFT, MARSCHALL, MAHR, REIDEMEISTER, THEILE und WALCHER in Marburg, MOLLWO, SAUR und VOLZ in Erlangen. Ihnen allen bin ich zu großem Dank verpflichtet.

